



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類7 C08L 21/00, 83/04, 15/02, 27/12, C08K 3/22, 3/36, H01L 23/29</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO00/42100</p> <p>(43) 国際公開日 2000年7月20日(20.07.00)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP00/00055</p> <p>(22) 国際出願日 2000年1月11日(11.01.00)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平11/5862 1999年1月12日(12.01.99) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) ダイキン工業株式会社 (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.)(JP/JP) 〒530-8323 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅田センタービル Osaka, (JP)</p> <p>(72) 発明者 ; および</p> <p>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 田中宏幸(TANAKA, Hiroyuki)(JP/JP) 長谷川雅典(HASEGAWA, Masanori)(JP/JP) 野口 剛(NOGUCHI, Tsuyoshi)(JP/JP) 東野克彦(HIGASHINO, Katsuhiko)(JP/JP) 〒566-8585 大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社 淀川製作所内 Osaka, (JP)</p> <p>(74) 代理人 朝日奈宗太, 外(ASAHI, Sohta et al.) 〒540-0012 大阪府大阪市中央区谷町二丁目2番22号 NSビル Osaka, (JP)</p>		<p>(81) 指定国 CA, CN, JP, KR, SG, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>
<p>(54)Title: <b>CROSSLINKABLE ELASTOMER COMPOSITION AND FORMED ARTICLE PREPARED FROM SAID COMPOSITION</b></p> <p>(54)発明の名称 架橋性エラストマー組成物および該組成物から製造される成形品</p> <p>(57) Abstract</p> <p>An elastomeric formed article which is prepared by crosslinking and forming a crosslinkable elastomeric composition comprising a silicon oxide filler having a content of the impurity metals other than silicon of 100 ppm or less and a fluorine-containing elastomer component, and which has a content of impurity metals of 100 ppm or less, and which shows a rate of increase of particles by the irradiation of oxygen plasma of 1,000 % or less, or an amount of impurity metals other than silicon being extracted with 50 % HF of 200 ppb or less. The elastomeric formed article is extremely clean and is excellent in the resistance to plasma and the resistance to extraction therefrom of impurity metals, and thus is suitable as a formed article or its material for use in a manufacturing apparatus for a semiconductor and a liquid crystal.</p>		

極めてクリーンで耐プラズマ性および耐金属溶出性に優れた半導体または液晶の製造装置用の成形品材料として好適なエラストマー成形物を提供する。該成形物はケイ素以外の不純物金属の含有量が100ppm以下の酸化ケイ素フィラーとフッ素系エラストマー成分とからなる架橋性エラストマー組成物を架橋成形して得られ、不純物金属含有量が100ppm以下で、かつ酸素プラズマ照射によるパーティクル増加率が1000%以下、または50%HFによるケイ素以外の不純物金属抽出量が200ppb以下のものである。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SE	スウェーデン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロベニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドバ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサオ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	US	米国
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	VN	ヴェトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェッコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

## 明 細 書

### 架橋性エラストマー組成物および

### 該組成物から製造される成形品

#### 技術分野

本発明は、半導体製造装置に用いる、たとえばそれらの封止に用いるシール材など成形品を提供し得るクリーンな架橋性エラストマー組成物、およびそれから得られる耐プラズマ性、耐金属溶出性などに優れかつ不純物金属含有量が低減化された成形品に関する。

#### 背景技術

半導体素子の製造には極めて高いクリーンさが要求されており、クリーンさの要請は半導体製造工程の管理に止まらず、製造装置自体はもとより、その部品にまで及んでいる。半導体製造装置用の部品は装置に組み込んでから洗浄などでクリーン化できる程度は限られおり、組み込む以前に高度にクリーン化されていることが要求される。半導体の製造において特に問題となる汚染は、パーティクルと呼ばれる微粒子、有機化合物のほか、溶出金属分であり、微細なエッチング処理などに影響を与えている。

本発明が特に好適に適用できる半導体製造装置用のシール材などの成形品も同様に高いクリーンさが要求されており、本出願人はシール材自体の高クリーン化を成形後のシール材に特殊な洗浄方法などを施すことにより達成している（W O 9 9 / 4 9 9 9 7 パンフレット）。

ところでこの種のシール材はゴムなどの架橋性エラストマー組成物を架橋成形して作製されており、機械的特性を付与するために組成物に酸化チタンや酸化ケイ素などの金属酸化物フィラーが充填されることがある。

半導体の製造工程において酸素プラズマアッシングなどのドライ工程が施されることがある。そのドライプロセスにおいて、エラストマー製の成形部品からパーティクル（不純物微粒子）が発生することがあり、これも汚染源として排除しなければならない。

また、半導体製造工程にはドライプロセスの他に、超純水、塩酸などを使用するウェットプロセスもあり、このウェットプロセスでは不純物金属の溶出をゼロに近づける必要がある。

本発明は、不純物金属含有量が低減化され、耐プラズマ性、耐金属溶出性などに優れた金属酸化物フィラー含有架橋性エラストマー組成物を提供することを目的とする。

さらに本発明は、該組成物を架橋成形して得られる耐プラズマ性に優れた成形品に関する。

さらにまた本発明は、該組成物を架橋成形して得られる耐金属溶出性に優れた成形品に関する。特に、半導体製造装置の封止のために用いるシール材に関する。

### 発明の開示

すなわち本発明は、ケイ素以外の不純物金属の含有量が100ppm以下の酸化ケイ素フィラーが60重量%以上を占める金属酸化物フィラーとエラストマー成分とを含む架橋性エラストマー組成物に関する。

本発明によれば、特定の酸化ケイ素フィラーをフッ素系やシリコン系のエラストマー成分に配合して得られる架橋性エラストマー組成物は、優れた機械的特性をもつ成形品を提供できる。この成形品を前記したW O 9 9 / 4 9 9 9 7パンフレット記載の特殊な洗浄法、すなわち超純水により洗浄する方法、洗浄温度で液状のクリーンな有機化合物や無機水溶液により洗浄する方法、乾式エッチング洗浄する方法、抽出洗浄する方法にしたがって処理することにより極めて高度にクリーン化され、しかも耐プラズマ性や耐金属溶出性に優れた半導体製造装置用の成形品が得られる。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明で使用する金属酸化物フィラーは酸化ケイ素フィラーの量が多い方が好ましく、60重量%以上、さらに75重量%以上、とくに単独で使うことが好ましい。

酸化ケイ素フィラーとして特に成形品に優れた耐プラズマ性を与えるものとして、たとえば高純度合成石英や高純度合成シリカなどが好適である。

特に石英結晶構造を有する高純度合成石英は、耐薬品性（たとえば耐酸性など）に優れる。また、フッ素系エラストマーを使用する成形品を純水を使用するウェットプロセスに使う場合、フッ素系エラストマーから不可避免的にフッ素イオンが解離するが、この解離したフッ素イオンが装置内に放出される前に取り込むという受酸剤的な作用を有しており、フッ酸の生成を抑制することができる。こうした高純度合成石英としては、たとえば

(株)龍森製の1-FX(超高純度合成石英球状シリカ)があげられる。また、高純度合成シリカとしては(株)龍森製のSO-E1、SO-E2、SO-E3、SO-E4などがあげられる。

かかる酸化ケイ素フィラーは、ケイ素以外の不純物金属含有量が100ppm以下、好ましくは70ppm以下、さらに50ppm以下、特に10ppm以下のものが好ましい。

本発明の金属酸化物の平均粒径は約0.05～10.0 $\mu$ m、好ましくは0.1～5.0 $\mu$ mである。

酸化ケイ素フィラー以外の金属酸化物フィラーとしては、構成金属以外の不純物金属含有量が100ppm以下、好ましくは50ppm以下であり、好ましくはpHが5.0～11.0に調整されているものが好ましい。構成金属はチタン、コバルト、鉄、アルミニウム、クロム、亜鉛、タングステンまたはモリブデンの少なくとも1種であるのが好ましい。

かかる酸化ケイ素以外の不純物金属含有量が低減化された他の金属酸化物フィラーは、原料金属酸化物フィラーを酸により抽出処理して金属酸化物フィラーの不純物金属含有量を低減化し、ついでアルカリで処理して残存する酸を中和することにより得ることができる。

本発明における任意成分である他の金属酸化物には、1種の金属の酸化物のほか、2種以上の金属を含む複合金属酸化物、金属酸化物に変化し得る金属水酸化物が含まれる。金属としては、チタン、コバルト、鉄、アルミニウム、クロム、亜鉛、タングステンまたはモリブデンの少なくとも1種を含むものが好ましい。抽出除去する

不純物金属は金属酸化物を構成する金属以外の金属をいうが、特にナトリウム、カリウム、リチウムなどのアルカリ金属、銅、ニッケルなどは半導体素子の歩留りを低下させる点から存在させないことが好ましい。

金属酸化物の具体例としては、たとえば  $\text{TiO}_2$ 、 $\text{Co}_3\text{O}_4$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{WO}_3$ 、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{MoO}_3$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  などの単一金属酸化物；またはそれらの複合金属酸化物があげられる。これらのうち、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZnO}$  などが補強効果に優れる点から好ましく、特に  $\text{TiO}_2$  好ましい。

本発明における任意成分である他の金属酸化物フィラーは、構成金属以外の不純物金属の含有量が 100 ppm 以下、好ましくは 70 ppm 以下、さらに好ましくは 50 ppm 以下、特に 30 ppm 以下のものである。不純物金属の低減化は原料金属酸化物を硫酸、硝酸、フッ酸、塩酸などの酸により処理して不純物金属を抽出すればよい。

本発明では金属酸化物フィラーが酸性の場合、架橋性エラストマー組成物に配合しても架橋阻害が生じないように、過酸化物架橋の阻害原因となる処理後の金属酸化物に存在する酸を中和する処理を行なう。中和処理はアルカリによって行なえばよいが、使用するアルカリとしては金属を含むアルカリの使用は避ける方が、汚染源を減らす点から好ましい。好ましいアルカリとしては、たとえばアンモニア水のほか、トリエタノールアミン、トリエチルアミン、ジエチルアミンなどの塩基性アミン、アンモニアガスなどがあげられる。特に取扱い性、分離、除去の点から濃度 1 ~ 28 重量%のアンモニア水が好ま

しい。中和処理により、酸処理後に2.0～4.0であったpHが5.0～11.0にまで上がる。好ましいpHは5.0～9.0である。

中和処理はアルカリ水中に浸漬する方法が簡便でよいが、アルカリ水を噴霧する方法などの方法でもよい。

さらに中和処理後、超純水などのクリーンな薬液で洗浄し、生成した塩や残存する微粒子などを除去することが好ましい。

中和処理、洗浄された金属酸化物フィラーは分離され乾燥されるが、乾燥も清浄なガスなどのクリーンな雰囲気下で行なうことが好ましい。清浄なガスとしては、たとえば窒素ガス、ヘリウムガス、アルゴンガスなどの高純度不活性ガスが好ましく使用できる。乾燥は50～150℃で5～24時間予備乾燥した後、さらに200～300℃にて1～24時間加熱することにより行なうことが好ましい。

中和処理は、前記した方法のほか、単に超純水などのクリーンな薬液にて洗浄する方法、アンモニアガスに曝す方法でもよい。この際に用いるクリーンな薬液としては、金属含有量が1.0ppm以下でありかつ粒径が0.2μm以上の微粒子を300個/mlを超えて含まない超純水、金属含有量が1.0ppm以下でありかつ粒径が0.5μm以上の微粒子を200個/mlを超えて含まない洗浄温度で液状の有機化合物または無機水溶液などが好ましい。

本発明のクリーンな金属酸化物フィラーは架橋性のエラストマーに配合され架橋性エラストマー組成物とされる。配合量はエラストマー成分100重量部(以下、「部」



という) に対して 1 ~ 150 部、好ましくは 1 ~ 80 部である。多量に配合するときは脱落するフィラー量が増え、パーティクルの原因になりやすい。

エラストマー成分としては特に限定されないが、半導体製造装置用のシール材の製造原料として使用する場合はフッ素系エラストマーおよびシリコン系エラストマーが好ましい。

フッ素系エラストマーとしては、過酸化物架橋可能なエラストマーまたは、イミダゾール架橋、オキサゾール架橋もしくはチアゾール架橋可能なフッ素系エラストマーが好ましく使用できる。

過酸化物架橋可能なフッ素系エラストマーとしては、つぎのものがあげられる。

テトラフルオロエチレン 40 ~ 90 モル%、式 (1) :



(式中、 $\text{R}_1$  は炭素数 1 ~ 5 のパーフルオロアルキル基、または炭素数 3 ~ 12 でかつ酸素原子を 1 ~ 3 個含むパーフルオロアルキル (ポリ) エーテル基) で表されるパーフルオロビニルエーテル 10 ~ 60 モル%、および硬化部位を与える単量体 0 ~ 5 モル%からなるパーフルオロ系エラストマー。

ビニリデンフルオリド 30 ~ 90 モル%、ヘキサフルオロプロピレン 15 ~ 40 モル%、テトラフルオロエチレン 0 ~ 30 モル%からなるビニリデンフルオリド系エラストマー。

エラストマー性含フッ素ポリマー鎖セグメントと非エラストマー性含フッ素ポリマー鎖セグメントを有する含フッ素多元セグメント化ポリマーであって、エラストマー

性含フッ素ポリマー鎖セグメントが、テトラフルオロエチレン 40 ～ 90 モル %、式 (1) :



(式中、 $\text{R}_1$  は炭素数 1 ～ 5 のパーフルオロアルキル基、または炭素数 3 ～ 12 でかつ酸素原子を 1 ～ 3 個含むパーフルオロアルキル (ポリ) エーテル基) で表されるパーフルオロビニルエーテル 10 ～ 60 モル %、および硬化部位を与える単量体 0 ～ 5 モル % からなり、非エラストマー性含フッ素ポリマー鎖セグメントが、テトラフルオロエチレン 85 ～ 100 モル %、式 (2) :



(式中、 $\text{R}_1'$  は  $\text{CF}_3$  または  $\text{OR}_1''$  ( $\text{R}_1''$  は炭素数 1 ～ 5 のパーフルオロアルキル基)) 0 ～ 15 モル % からなるパーフルオロ系熱可塑性エラストマー。

エラストマー性含フッ素ポリマー鎖セグメントと非エラストマー性含フッ素ポリマー鎖セグメントからなり、エラストマー性含フッ素ポリマー鎖セグメントがビニリデンフルオリド 45 ～ 85 モル % とこのビニリデンフルオリドと共重合可能な少なくとも一種の他の単量体とからそれぞれ誘導された繰り返し単位を含む含フッ素多元セグメント化ポリマー。ここで他の単量体としては、ヘキサフルオロプロピレン、テトラフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン、トリフルオロエチレン、トリフルオロプロピレン、テトラフルオロプロピレン、ペンタフルオロプロピレン、トリフルオロブテン、テトラフルオロイソブテン、パーフルオロ (アルキルビニルエーテル)、フッ化ビニル、エチレン、プロピレン、アルキルビニルエーテルなどがあげられる。

ジヨウ素化合物の存在下にラジカル重量により得られる、ヨウ素含有フッ素化ビニルエーテル単位 0.005 ~ 1.5 モル%、フッ化ビニリデン単位 40 ~ 90 モル% およびパーフルオロ（メチルビニルエーテル）単位 3 ~ 35 モル%（場合により 25 モル%までのヘキサフルオロプロピレン単位および／または 40 モル%までのテトラフルオロエチレン単位を含んでいてもよい）からなる耐寒性含フッ素エラストマー（特開平 8-15753 号公報）。テトラフルオロエチレンとプロピレンとの共重合体（米国特許第 3,467,635 号明細書）など。

この過酸化物架橋系に使用する架橋剤である過酸化物は、従来使用されている過酸化物が使用できるが、金属元素を含まないものがよいことは当然である。具体例としては、たとえば 2,2-ジメチル-2,5-ジ（t-ブチルパーオキシ）ヘキサンなどがあげられる。

イミダゾール架橋、オキサゾール架橋またはチアゾール架橋可能なフッ素系エラストマーは、得られる成形品に極めて高い耐熱性を付与することができる。具体例としては、テトラフルオロエチレン単位と前記式（1）で示されるパーフルオロビニルエーテル単位を含み、架橋性反応基としてニトリル基、カルボキシル基および／またはアルコキシカルボニル基を有するフッ素系エラストマーである。

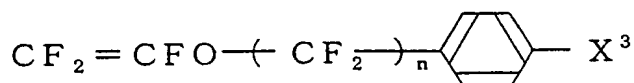
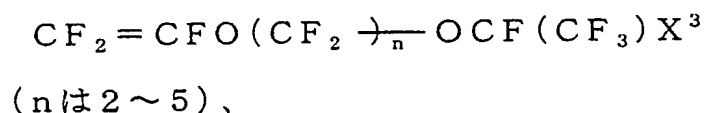
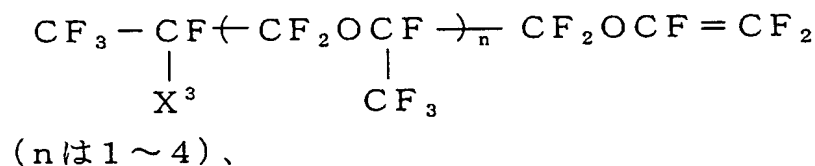
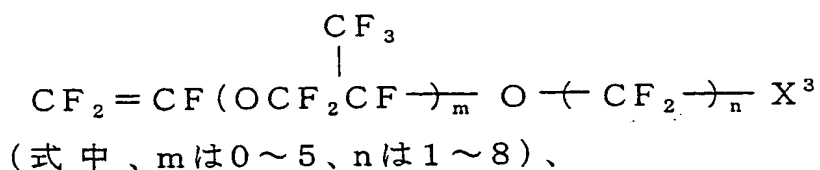
パーフルオロビニルエーテルとしては、パーフルオロ（メチルビニルエーテル）（PMVE）、パーフルオロ（エチルビニルエーテル）（PEVE）、パーフルオロ（プロピルビニルエーテル）（PPVE）などがあげられ、なかでも PMVE が好ましい。

テトラフルオロエチレン単位とパーフルオロビニルエーテル単位の含有比率はモル％で、40～90／60～10である。

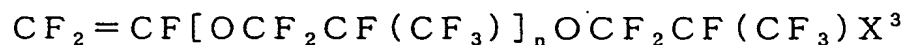
イミダゾール架橋、オキサゾール架橋またはチアゾール架橋可能なフッ素系エラストマーに架橋反応性を付与する架橋性反応基としては、ニトリル基、カルボキシル基および／またはアルコキシカルボニル基である。アルコキシカルボニル基としては、たとえばメトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基などがあげられる。架橋性反応基の含有量は、5モル％以下、好ましくは2モル％以下である。

これらの架橋性反応基を導入する方法としては、架橋性反応基または架橋性反応基に変換し得る基を有する単量体を共重合する方法（共重合法）、重合末端の重合開始剤部分をカルボキシル基などに変換する方法（末端基変換法）などがある。

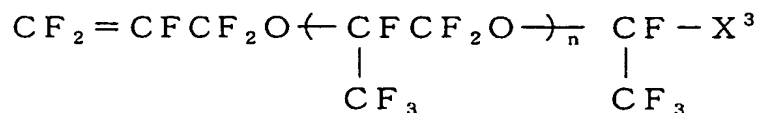
共重合法に使用する単量体としては、



(nは1～6)、



(nは1～2)、または

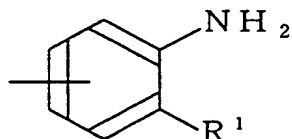


[X<sup>3</sup>CN、COOHまたはCOOR<sup>5</sup>(R<sup>5</sup>は炭素数1～10のフッ素原子を含んでもよいアルキル基)である]

で示されるニトリル基含有単量体、カルボキシル基含有単量体、アルコキシカルボニル基含有単量体などがあげられる。

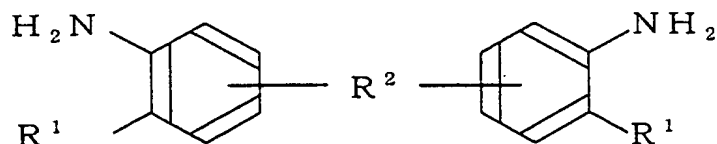
これらのうち末端基の少なくとも1つがカルボキシル基またはアルコキシカルボニル基である場合は、ニトリル基またはカルボキシル基を含有する単量体を共重合するのが架橋反応性の点で好ましい。

このイミダゾール架橋系、オキサゾール架橋系またはチアゾール架橋系に使用する架橋剤としては、アミノ基を2個以上有する化合物を使用するのが好ましいが、特に耐熱性を高める点から式(I)：

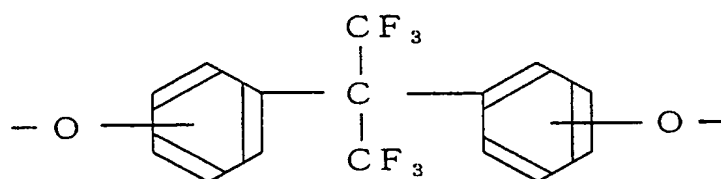


(式中、R<sup>1</sup>はOH、NH<sub>2</sub>またはSHのいずれか1種である)で示される官能基(I)を少なくとも2個有する化合物が好ましい。

具体的な式(I)で示される化合物としては、式(II)：

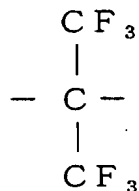


(式中、 $R^1$ は前記と同じ。 $R^2$ は $-SO_2-$ 、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、炭素数1～6のアルキレン基、炭素数1～10のパーフルオロアルキレン基、単結合手または式(III)：



で示される基である)で示される化合物である。なお、左右の官能基(I)におけるフェニル基に対する $NH_2$ 基と $R^1$ 基との位置関係は左右で同じでも逆でもよい。

$R^2$ の置換されていてもよいアルキレン基の好ましい具体例としては、限定的ではないが、たとえば炭素数1～6の非置換アルキレン基または炭素数1～10のパーフルオロアルキレン基などであり、パーフルオロアルキレン基としては



などがあげられる。なお、これらの $R^2$ は、特公平2-59177号公報、特開平8-120146号公報などでビスジアミノフェニル化合物の例示として知られてい

るものである。

$R^2$  は左右のベンゼン環のいずれの位置に結合していてもよいが、合成が容易で架橋反応が容易に進行することから、 $NH_2$  基または  $R^1$  基のいずれがパラ位になるように結合していることが好ましい。

具体例としては、限定的ではないが、たとえば 2, 2-ビス-(3, 4-ジアミノフェニル)ヘキサフルオロプロパン、ビス-(3, 4-ジアミノフェニル)メタン、ビス-(3, 4-ジアミノフェニル)エーテルなどのビスジアミノフェニル化合物(イミダゾール架橋系)；

2, 2-ビス(3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル)ヘキサフルオロプロパン(一般名：ビス(アミノフェノール)AF)などのビスアミノフェノール化合物(オキサゾール架橋系)；

2, 2-ビス(3-アミノ-4-メルカプトフェニル)ヘキサフルオロプロパンなどのビスアミノチオフェノール化合物(チアゾール架橋系)などがあげられる。

これらの架橋剤は、機械的強度、耐熱性、耐薬品性に優れ、特に耐熱性と耐薬品性にバランスよく優れた成形品を与えるものである。

シリコーン系エラストマーとしては、たとえばシリコーンゴム、フルオロシリコーンゴムなどが好ましい。

エラストマー組成物は所望の製品の形状に架橋成形される。架橋方法は前記の過酸化物架橋、イミダゾール架橋、オキサゾール架橋またはチアゾール架橋が好ましいが、その他公知の架橋方法、たとえばトリアジン架橋、ポリオール架橋、ポリアミン架橋などでも、また、放射線架橋、電子線架橋などの方法でもよい。

架橋剤の使用量は、エラストマー成分100部（重量部。以下同様）に対して架橋剤を0.05～10部、好ましくは0.1～2.0部、さらに必要に応じて架橋助剤を0.1～10部、好ましくは0.3～5.0部配合する。そのほか、本発明の効果を損なわない範囲で加工助剤、内添離型剤などを配合してもよい。

本発明の架橋性エラストマー組成物は半導体製造装置用の成形品、特に高度なクリーンさが要求される半導体製造装置の封止用のシール材の製造に好適に使用できる。シール材としてはＯ－リング、角－リング、ガスケット、パッキン、オイルシール、ベアリングシール、リップシールなどがあげられる。

そのほか、各種のエラストマー製品、たとえばダイヤフラム、チューブ、ホース、各種ゴムロールなどとしても使用できる。また、コーティング用材料、ライニング用材料としても使用できる。

本発明の成形品は後述するプラズマエッチング装置のようなドライプロセスに使用する半導体製造装置の封止用シール材のほか、金属溶出を低減化できるので洗浄装置などのようなウェットプロセスに使用する半導体製造装置の封止用シール材として好適である。

ドライプロセスに好適な成形品は、灰化分析法による不純物金属含有量が100ppm以下、好ましくは50ppm以下であり、酸素プラズマ照射によるパーティクルの増加率が1000%以下、好ましくは500%以下、より好ましくは200%以下である。なお、酸素プラズマ照射によるパーティクルの増加数は $50 \times 10^4$ 個/cm<sup>2</sup>以下であるのが好ましい。



また、ウェットプロセスに好適な成形品は、 $H_2SO_4$  /  $H_2O_2$  (4 / 1、重量比) による不純物金属抽出量が Fe および Na の合計量で 8 p p b を超えず、50 % HF によるケイ素以外の不純物金属抽出量が 200 p p b 以下、好ましくは 100 p p b 以下である。

なお、本発明でいう半導体製造装置は、特に半導体を製造するための装置に限られるものではなく、広く、液晶パネルやプラズマパネルを製造するための装置など、高度なクリーン度が要求される半導体分野において用いられる製造装置全般を含むものである。

具体的には、次のような半導体製造装置が例示される。

(1) エッチング装置

ドライエッチング装置 [ドライプロセス用の装置]

プラズマエッチング装置 [ドライプロセス用の装置]

反応性イオンエッチング装置 [ドライプロセス用の装置]

反応性イオンビームエッチング装置 [ドライプロセス用の装置]

スパッタエッチング装置 [ドライプロセス用の装置]

イオンビームエッチング装置 [ドライプロセス用の装置]

ウェットエッチング装置 [ウェットプロセス用の装置]

アッシング装置 [ドライプロセス用の装置]

(2) 洗浄装置

乾式エッチング洗浄装置 [ドライプロセス用の装置]

UV /  $O_3$  洗浄装置 [ドライプロセス用の装置]

イオンビーム洗浄装置 [ドライプロセス用の装置]

レーザービーム洗浄装置 [ドライプロセス用の装置]

プラズマ洗浄装置 [ドライプロセス用の装置]

ガスエッチング洗浄装置 [ドライプロセス用の装置]

抽出洗浄装置

ソックスレー抽出洗浄装置 [ウェットプロセス用の装置]

高温高圧抽出洗浄装置 [ウェットプロセス用の装置]

マイクロウェーブ抽出洗浄装置 [ウェットプロセス用の装置]

超臨界抽出洗浄装置 [ウェットプロセス用の装置]

(3) 露光装置

ステッパー [ウェットプロセス用の装置]

コータ・デベロッパー [ウェットプロセス用の装置]

(4) 研磨装置

CMP装置 [ウェットプロセス用の装置]

(5) 成膜装置

CVD装置 [ドライプロセス用の装置]

スパッタリング装置 [ドライプロセス用の装置]

(6) 拡散・イオン注入装置

酸化拡散装置 [ドライプロセス用の装置]

イオン注入装置 [ドライプロセス用の装置]

(7) フッ酸、塩酸、硫酸、オゾン水などを用いる洗浄装置 [ウェットプロセス用の装置]

つぎに実施例をあげて本発明を説明するが、本発明はかかる実施例のみに限定されるものではない。

なお、以下の実施例および比較例で使用した酸化ケイ素フィラーの不純物金属含有量を表1に示す。

(フィラー不純物金属含有量)

酸化ケイ素フィラー 0.1 g を白金ルツボに入れ温浴

中で 50% フッ酸 5 ml に分散溶解させた後、超純水で希釈する。この溶液を原子吸光度計（（株）日立製作所製の Z8000）により金属成分を原子吸光分析にて定量する。なお、検出対象金属は、表 1 に記載の金属である。各金属のフィルター中の含有量は次式により求める。

$$\text{金属含有量 (ppm)} = \frac{\text{溶液中の濃度 (ppm)}}{\text{フィルターの重量 (g)}} \times \text{溶液重量 (g)}$$

#### 実施例 1

着火源をもたない内容積 6 リットルのステンレススチール製オートクレーブに、純水 2 リットルおよび乳化剤として  $\text{C}_7\text{F}_{15}\text{COONH}_4$  20 g、pH 調整剤としてリン酸水素二ナトリウム・12 水塩 0.18 g を仕込み、系内を窒素ガスで十分に置換し脱気したのち、600 rpm で攪拌しながら、50℃ に昇温し、テトラフルオロエチレン (TFE) とパーフルオロ (メチルビニルエーテル) (PMVE) の混合ガス (TFE / PMVE = 20 / 80 モル比) を、内圧が 1.18 MPa・G になるように仕込んだ。ついで、過硫酸アンモニウム (APS) の 186 mg / ml の濃度の水溶液 2 ml を窒素圧で圧入して反応を開始した。

重合の進行により内圧が、1.08 MPa・G まで降下した時点で、ジヨウ素化物  $\text{I}(\text{CF}_2)_4\text{I}$  4.0 g を窒素圧にて圧入した。ついで TFE と PMVE の混合ガス (モル比 19 / 23) をプランジャーポンプにて圧入し、1.08 ~ 1.18 MPa の間で昇圧、降圧を繰り返した。

TFE および PMVE の合計仕込量がそれぞれ 430

g、511gおよび596gに達した時点で $\text{ICH}_2\text{CF}_2\text{CF}_2\text{OCF}=\text{CF}_2$ を1.5g圧入するとともに、反応開始後から12時間ごとに35mg/mlのAPS水溶液2mlを窒素圧で圧入して重合反応を継続し、反応開始から35時間後に重合を停止した。

この水性乳濁液をドライアイス／メタノール中で凍結させて凝析を行ない、解凍後、凝析物を水洗、真空乾燥してエラストマー状共重合体を得た。この重合体のムーニー粘度ML1+10(100℃)は63であった。

この共重合体の $^{19}\text{F}$ -NMR分析の結果から、この共重合体のモノマー単位組成は、TFE／PMVE=59.2／40.8モル％であり、元素分析から得られたヨウ素含有量は0.03重量％であった。

このテトラフルオロエチレン／パーフルオロ（アルキルビニルエーテル）共重合体エラストマー100gに1-FX（（株）龍森製の超高純度合成石英球状シリカ。平均粒子径0.38 $\mu\text{m}$ ）10gと2,5-ジメチルージ（t-ブチルパーオキシ）ヘキサン（日本油脂（株）製のパーヘキサ2.5B）0.5gとトリアリルイソシアヌレート（TAIC）（日本化成（株）製）2.0gを混練して、本発明のエラストマー組成物を調製した。ついで、この組成物を160℃×10分間の圧縮成形によりプレス架橋（一次架橋）し、ついで180℃で4時間のオープン架橋（二次架橋）してオーリング（AS-568A-214）を作製した。

このオーリングを十分に多量の $\text{H}_2\text{SO}_4$ ／ $\text{H}_2\text{O}_2$ （4／1、重量比）により100℃30分間攪拌下で洗浄し、純水でリンスしたのち、クリーン環境下で乾燥し、試料



る。

ついで、得られたＯ－リングについて不純物金属抽出量をつぎの方法で調べた。結果を表３（ $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$ （４／１、重量比）抽出）および表４（５０％ $\text{HF}$ 抽出）に示す。

（金属抽出試験）

（１）予め充分洗浄したテトラフルオロエチレン－パーフルオロ（アルキルビニルエーテル）共重合体（いわゆる $\text{PFA}$ ）製の容器（フタ付き）に抽出用薬液を所定量入れる。

（２）使用する抽出用薬液は $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$ （４／１）混合液および５０％ $\text{HF}$ 水溶液であり、いずれも半導体グレードのものを用いる。

（３）充分に多量の $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$ （４／１、重量比）により１００℃３０分間攪拌下で洗浄し、純水でリンスしたのち、クリーン環境下で乾燥して得た試料Ｏ－リングをそれぞれの薬液中に浸漬し、密封の後、所定温度で所定時間保持する（ $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$ （４／１）混合液では２５℃１４日間、５０％ $\text{HF}$ 水溶液では２５℃２４時間）。その際試料を浸漬せず薬液のみで同様の保管をしたものを対照とする。

（４）前記の期間保管した後、薬液中の含有金属濃度を $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$ （４／１）混合液については $\text{ICP-M S}$ （セイコー電子（株）製の $\text{SPQ9000}$ ）で、５０％ $\text{HF}$ 水溶液については原子吸光測定装置（（株）日立製作所製の $\text{Z-8000}$ ）で測定する。

（５）次式にしたがってＯ－リングから抽出された金属量を算出する。

抽出金属量  
(ppb)

$$= \left\{ \frac{\text{浸漬した薬液中の金属濃度 (ppb)} - \text{浸漬しない薬液中の金属濃度 (ppb)}}{\text{O-リング重量 (g)}} \right\} \times \text{浸漬に用いた薬液重量 (g)}$$

さらに、得られたO-リングについて、つぎの方法で不純物金属含有量を調べた。結果を表5に示す。

(不純物金属含有量)

試料O-リング0.5～2.0gを清浄な白金ルツボに入れ、600℃で2時間加熱し充分灰化させる。ルツボ内に残った灰に5重量%フッ酸5mlを加え温浴中で加熱して溶解させた後、超純水で希釈する。この溶液を原子吸光度計((株)日立製作所製のZ8000)により金属成分を原子吸光分析にて定量する。なお、検出対象金属は、表1に記載の金属である。各金属のO-リング中の含有量は次式により求める。

$$\text{金属含有量 (ppm)} = \frac{\text{溶液中の濃度 (ppm)}}{\text{O-リングの重量 (g)}} \times \text{溶液重量 (g)}$$

#### 比較例 1

金属酸化物フィラーとして1-FXに代えて高品位酸化チタンフィラー(TM-1、富士チタン工業(株)製)10gを使用したほかは実施例1と同様にして、比較用のエラストマー組成物を調製し、実施例1と同様にして架橋しO-リングを作製した。

このものの耐酸素プラズマ性試験前後のパーティクル

数を調べた。結果を表 2 に示す。

#### 比較例 2

金属酸化物フィラーとして 1 - F X に代えて高品位酸化チタンフィラー (T M - 1、富士チタン工業 (株) 製) 5 g と 1 - F X 5 g の混合物を使用したほかは実施例 1 と同様にして、比較用のエラストマー組成物を調製し、実施例 1 と同様にして架橋し O - リングを作製した。

このものの耐酸素プラズマ性試験前後のパーティクル数を調べた。結果を表 2 に示す。

#### 比較例 3

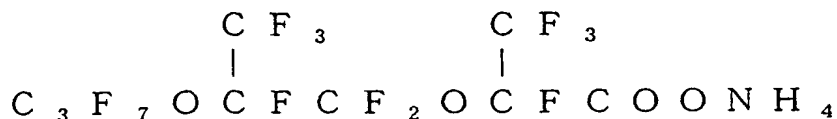
金属酸化物フィラーとして 1 - F X に代えて湿式法ホワイトカーボンフィラー (カープレックス # 1 1 2 0、塩野義製薬 (株) 製) 1 0 g を使用したほかは実施例 1 と同様にして、比較用のエラストマー組成物を調製し、実施例 1 と同様にして架橋し O - リングを作製した。

得られた O - リングについて実施例 1 と同様にして不純物金属抽出量を調べた。結果を表 3 (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (4/1) 抽出) および表 4 (50% HF 抽出) に示す。

さらに、実施例 1 と同様にして、得られた O - リングについて、前記の O - リングの不純物金属含有量と同じ方法で不純物金属含有量を調べた。結果を表 5 に示す。

#### 実施例 2

着火源をもたない内容積 3 リットルのステンレススチール製オートクレーブに、純水 1 リットルおよび乳化剤として





10 g、pH調整剤としてリン酸水素二ナトリウム・12水塩0.09 gを仕込み、系内を窒素ガスで十分に置換し脱気したのち、600 rpmで攪拌しながら、50℃に昇温し、テトラフルオロエチレン（TFE）とパーフルオロ（メチルビニルエーテル）（PMVE）の混合ガス（TFE／PMVE＝25／75モル比）を、内圧が0.78 MPa・Gになるように仕込んだ。ついで、過硫酸アンモニウム（APS）の527 mg／mlの濃度の水溶液10 mlを窒素圧で圧入して反応を開始した。

重合の進行により内圧が、0.69 MPa・Gまで降下した時点で、 $\text{CF}_2=\text{CFOCF}_2\text{CF}(\text{CF}_3)\text{OCF}_2\text{CF}_2\text{COOH}$ （CBVE）1.89 gを窒素圧にて圧入した。ついで圧力が0.78 MPa・Gになるように、TFEを4.7 gおよびPMVE 5.3 gをそれぞれ自圧にて圧入した。以後、反応の進行にともない同様にTFE、PMVEを圧入し、0.69～0.78 MPa・Gのあいだで、昇圧、降圧を繰り返した。重合反応の開始から4.2時間後、TFEおよびPMVEの合計仕込み量が80 gになった時点で、オートクレーブを冷却し、未反応モノマーを放出して固形分濃度7.5重量％の水性分散体1089 gをえた。

この水性分散体のうち1000 gを水3000 gで希釈し、3.5重量％塩酸水溶液2800 g中に、攪拌しながらゆっくりと添加した。添加後5分間攪拌した後、凝析物をろ別し、得られたポリマーをさらに800 gのHCFCl-141b中にあげ、5分間攪拌し、再びろ別した。この後このHCFCl-141bによる洗浄、ろ別の操作をさらに4回繰り返したのち、120℃で72時

間真空乾燥させてエラストマー共重合体を得た。

$^{19}\text{F}$ -NMR分析の結果、この共重合体のモノマー単位組成は、 $\text{TFE} / \text{PMVE} / \text{CBVE} = 59.6 / 39.9 / 0.5$ モル％であった。

このテトラフルオロエチレン／パーフルオロ（アルキルビニルエーテル）共重合体エラストマー100gに1-FX（超高純度合成石英球状シリカ）10gと2,2-ビス（3,4-ジアミノフェニル）ヘキサフルオロプロパン2.0gを混練して、本発明のエラストマー組成物を調製した。ついで、この組成物を200℃×30分間の圧縮成形によりプレス架橋（一次架橋）し、ついで204℃で18時間、その後288℃で18時間のオープン架橋（二次架橋）してO-リング（AS-568A-214）を作製した。

得られたO-リングを実施例1と同様にして、耐酸素プラズマ性試験前後のパーティクル数を調べた。結果を表2に示す。

表 1

不純物金属	含有量 (ppm)		検出限界 (ppm)
	超高純度合成石英球状シリカ 実施例 1 および 2	湿式法ホワイトカーボン 比較例 3	
Na	2	27000	0.002
K	0.4	800	0.03
Ca	2	100	0.03
Fe	1	2	0.04
Ni	0.1	9	0.05
Cu	1	1	0.01
Cr	0.2	1	0.01
Mg	2	3	0.005
合計	8.7	27916	—

表 2

	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2
パーティクル数 ( $\times 10^4$ 個/cm <sup>2</sup> )				
照射前 (A)	0.9	0.9	0.9	0.9
照射後 (B)	2.3	2.1	17.8	17.3
増加数 (C=B-A)	1.4	1.2	16.9	16.4
増加率 (C/A $\times 100$ ) (%)	156	133	1878	1822

表 3

不純物金属	抽出量 (ppb)		検出限界 (ppb)
	実施例 1 (超高純度合成石英球状シリカ)	比較例 3 (湿式法ホワイトカーボン)	
Fe	検出限界以下	10	5
Ni	検出限界以下	検出限界以下	3
Cu	検出限界以下	検出限界以下	1
Na	検出限界以下	9	3
K	検出限界以下	検出限界以下	4
Ca	検出限界以下	検出限界以下	1
Mg	検出限界以下	検出限界以下	1
Zn	検出限界以下	検出限界以下	1
合計	検出限界以下	19	—

表 4

不純物金属	抽出量 (ppb)		検出限界 (ppb)
	実施例 1 (超高純度合成石英球状シリカ)	比較例 3 (湿式法ホワイトカーボン)	
Fe	10	80	1
Ni	検出限界以下	20	3
Cu	検出限界以下	1	1
Na	5	1000	0.5
K	3	40	0.5
Ca	5	20	1
Mg	20	30	0.4
Zn	20	50	1
合計	63	1241	—

表 5

不純物金属	含有量 (ppm)		検出限界 (ppm)
	実施例 1 (超高純度合成石英球状シリカ)	比較例 3 (湿式法ホワイトカーボン)	
Na	1	300	0.002
K	3	30	0.009
Ca	0.7	20	0.006
Mg	0.3	20	0.002
Fe	0.7	30	0.004
Ni	0.1	1	0.005
Cu	0.4	6	0.002
Cr	2	2	0.003
合計	8.2	409	—

産業上の利用可能性

本発明の酸化ケイ素を主体とする金属酸化物フィラーは、極めてクリーンで耐プラズマ性および耐金属溶出性に優れた半導体製造装置用の成形品材料として好適なエラストマー成形物を提供できる。

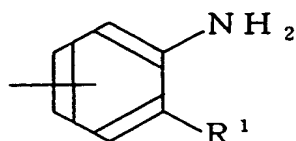
## 請求の範囲

1. ケイ素以外の不純物金属の含有量が100ppm以下の酸化ケイ素フィラーが60重量%以上を占める金属酸化物フィラーと架橋性エラストマー成分とを含む架橋性エラストマー組成物。
2. 金属酸化物フィラーが酸化ケイ素フィラー単独である請求の範囲第1項記載の架橋性エラストマー組成物。
3. 酸化ケイ素フィラーが、石英結晶構造を有するものである請求の範囲第1項または第2項記載の架橋性エラストマー組成物。
4. エラストマー成分100重量部に対して、前記酸化ケイ素フィラーが1～150重量部配合されてなる請求の範囲第1項～第3項のいずれかに記載の架橋性エラストマー組成物。
5. エラストマー成分100重量部に対して架橋剤を0.05～10重量部および前記酸化ケイ素フィラーを1～150重量部含む請求の範囲第1項～第4項のいずれかに記載の架橋性エラストマー組成物。
6. エラストマー成分がフッ素系エラストマーまたはシリコーン系エラストマーである請求の範囲第1項～第5項のいずれかに記載の架橋性エラストマー組成物。
7. エラストマー成分が過酸化物架橋可能なフッ素系エラストマーである請求の範囲第6項記載の架橋性エラストマー組成物。
8. エラストマー成分がイミダゾール架橋、オキサゾール架橋、チアゾール架橋またはトリアジン架橋可能なフッ素系エラストマーである請求の範囲第6項記載の

架橋性エラストマー組成物。

9. 架橋剤が有機過酸化物である請求の範囲第6項または第7項記載の架橋性エラストマー組成物。

10. 架橋剤が、式(I)：



(式中、 $\text{R}^1$ は $\text{OH}$ 、 $\text{NH}_2$ または $\text{SH}$ のいずれか1種である)で示される官能基(I)を少なくとも2個有する化合物である請求の範囲第6項または第8項記載の架橋性エラストマー組成物。

11. 請求の範囲第1項～第10項のいずれかに記載のエラストマー組成物を架橋成形して得られる成形品。

12. 酸素プラズマ照射によるパーティクル増加率が1000%以下である請求の範囲第11項記載の成形品。

13. 50%HFによるケイ素以外の不純物金属抽出量が200ppb以下である請求の範囲第11項記載の成形品。

14. ケイ素以外の不純物金属の含有量が100ppm以下である請求の範囲第11項記載の成形品。

15. 半導体製造装置に用いる請求の範囲第11項～第14項のいずれかに記載の成形品。

16. 半導体製造装置の封止のために用いるシール材である請求の範囲第15項記載の成形品。

17. ウェットプロセスに使用する半導体製造装置の封止のために用いるシール材である請求の範囲第13項記載の成形品。

18. 超純水を用いるプロセスに使用する半導体製造装置

の封止のために用いるシール材である請求の範囲第 1  
7 項記載の成形品。



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/00055

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> C08L21/00, C08L83/04, C08L15/02, C08L27/12,  
C08K3/22, C08K3/36, H01L23/29

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C08L21/00, C08L83/04, C08L15/02, C08L27/12,  
C08K3/22, C08K3/36, H01L23/29

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP, 496419, A2 (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 29 July, 1992 (29.07.92), Claims; page 2, line 58 to page 3, line 2	1-18
Y	Claims; page 2, line 58 to page 3, line 2 & JP, 5-105814, A Claims; Par. No. 0043 & US, 5276087, A & DE, 69223659, C3	1-18
Y	US, 5194479, A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 16 March, 1993 (16.03.93), Claims; Column 3, lines 7 to 12 & JP, 3-281572, A Claims; page 3, upper left column, lines 9 to 14 & EP, 449651, A1 & DE, 69103307, C3	1-18
Y	JP, 7-188387, A (Toshiba Chemical Corporation), 25 July, 1995 (25.07.95), Claims; Par. Nos. [0014] to [0016] (Family: none)	1-18

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
22 March, 2000 (22.03.00)

Date of mailing of the international search report  
04 April, 2000 (04.04.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L21/00, C08L83/04, C08L15/02, C08L27/12, C08K3/22, C08K3/36, H01L23/29

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L21/00, C08L83/04, C08L15/02, C08L27/12, C08K3/22, C08K3/36, H01L23/29

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	EP, 496419, A2 (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.) 29. 7月. 1992 (29. 07. 92) 特許請求の範囲、第2頁第58行-第3頁第2行 特許請求の範囲、第2頁第58行-第3頁第2行 & JP, 5-105814, A、特許請求の範囲、段落0043 & US, 5276087, A & DE, 69223659, C3	1-18 1-18
Y	US, 5194479, A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.) 16. 3月. 1993 (16. 03. 93) 特許請求の範囲、第3欄第7行-第12行 & JP, 3-281572, A、特許請求の範囲、第3頁左上欄	1-18

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22. 03. 00

国際調査報告の発送日

04.04.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

原田 隆興

4 J

9167

電話番号 03-3581-1101 内線 3495

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	第9行—第14行 & EP, 449651, A1 & DE, 69103307, C3  JP, 7-188387, A (東芝ケミカル株式会社) 25. 7月. 1995 (25. 07. 95) 特許請求の範囲、段落0014-0016 ファミリーなし	1-18

